## This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

### IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

### 19 BUNDESREPUBLIK

#### DEUTSCHLAND

# <sup>(1)</sup> Offenlegungsschrift<sup>(1)</sup> DE 3728557 A1

(5) Int. Cl. 4: B 01 D 53/34

> A 62 D 3/00 B 01 F 3/02 B 01 J 19/26 // B01D 53/36



DEUTSCHES PATENTAMT (2) Aktenzeichen:(2) Anmeldetag:

P 37 28 557.2 27. 8. 87

43 Offenlegungstag: 9. 3.89

Signal and a solution

(1) Anmelder:

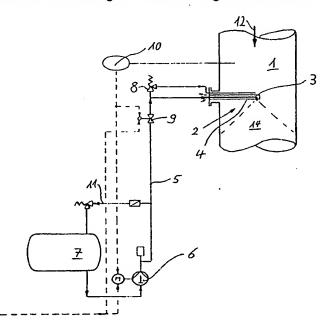
Didier Engineering GmbH, 4300 Essen, DE; Didier-Werke AG, 6200 Wiesbaden, DE ② Erfinder:

Flockenhaus, Claus, Prof. Dr., 4300 Essen, DE; Laue, Karl-Heinrich, 4320 Hattingen, DE; Sander, Theo, 4300 Essen, DE; Kainer, Hartmut, Dr., 6200 Wiesbaden, DE; Grimm, Daniel, 6229 Schlangenbad, DE; Schnelle, Wilfried, Dr., 4787 Geseke, DE; Thalheim, Dietmar, Dr., 6050 Offenbach, DE

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

(5) Verfahren zur Verteilung von Ammoniak in einem Gasstrom und Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens

Mit einem Verfahren und einer Vorrichtung soll auf einfache Weise eine gleichmäßige Verteilung von Ammoniak in einem heißen,  $\mathrm{NO}_{\mathrm{x}}$ -haltigen Gasstrom erreicht werden. Es wird hierfür das Ammoniak in flüssigem Aggregatzustand direkt in den heißen Gasstrom unter Druck eingedüst.



E 37 28 557 A

#### Patentansprüche

1. Verfahren zur Verteilung von Amoniak in einem heißen, NOx-haltigen Gasstrom, insbesondere Rauchgasstrom, dadurch gekennzeichnet, daß das Ammoniak in flüssigem Aggregatszustand direkt in den heißen Gasstrom eingedüst wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Ammoniak unter einem Druck von 2 bar bis 50 bar in den heißen Gasstrom einge- 10

düst wird.

3. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 oder 2, wobei ein vom Gasstrom durchströmter Reaktor vorgesehen ist, dadurch gekennzeichnet, daß in dem Reaktor (1) eine Düsen- 15 anordnung (2) angeordnet ist, der über eine Pumpe (6) flüssiges Ammoniak zugeführt ist.

4. Vorrichtung nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Düsenanordnung (2) ein Wärmeschutzrohr (4) aufweist, das einen Düsenstock (3) 20

der Düsenanordnung (2) umschließt.

5. Vorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Innenraum (15) des Wärmeschutzrohres (4) belüftet ist.

6. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden 25 Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen der Pumpe (6) und der Düsenanordnung (2) ein

Überströmventil (8) vorgesehen ist.

- 7. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die Dü- 30 senanordnung (2) mehrere von Wärmeschutzrohren (4) umschlossene Düsenstöcke (3) aufweist, die im Reaktor (1) parallel zueinander verlaufen und/ oder sich kreuzen.
- 8. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden 35 schlagen. Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß das Wärmeschutzrohr (4) sich durch den Reaktor (1) hindurch erstreckt.
- 9. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß der Dü- 40 senstock (3) beidseitig des Reaktors (1) an die Pumpe (6) angeschlossen ist.

10. Vorrichtung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß an dem Düsenstock (3) mehrere Düsen (13) angeordnet 45 sind.

#### Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Verteilung 50 von Ammoniak in einem heißen, NOx-haltigen Gasstrom, insbesondere Rauchgasstrom. Außerdem betrifft die Erfindung eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens.

Es ist in der Praxis bekannt, daß beim Einbringen von 55 vergleichsweise geringen Mengen Ammoniak in einen großen Gasstrom ungleichmäßige Ammoniak-Konzentrationen im Gasstrom auftreten. Diese Erscheinung tritt besonders bei Ammoniak-Konzentrationen von 300 bis 5000 ppmv auf. Bei katalytischen Prozessen, wie 60 beispielsweise der selektiven, katalytischen Reduktion von Stickoxiden, verringert sich dabei der Umsatz oder es treten Ammoniak-Durchbrüche auf.

Um die Verteilung von Ammoniak im Gasstrom zu verbessern, wurde vorgeschlagen, flüssiges Ammoniak 65 zunächst in den gasförmigen Aggregatszustand zu überführen und dieses gasförmige Ammoniak dann in den Gasstrom einzuleiten. Da das Volumen des Ammoniaks

im gasförmigen Aggregatszustand erheblich größer als im flüssigen Aggregatszustand ist, ist eine gleichmäßigere Verteilung im Gasstrom erreicht. Nachteilig ist dabei jedoch, daß das Ammoniak zunächst unter Energieeinsatz verdampft werden muß und anschließend über aufwendige, für den Transport des gasförmigen Ammoniaks geeignete großvolumige Verteilereinrichtungen, wie Brausen, statische Mischer, dem Gasstrom zugeführt werden muß. Solche Verteilereinrichtungen führen auch zu einem erhöhten Druckverlust des Gasstroms.

Um die Verteilung geringer Ammoniakmengen in einem großen Gasstrom zu verbessern, wurde auch vorgeschlagen, gasförmiges Ammoniak mit leicht verdichteter Luft im Verhältnis 1:20 bis 1:25 zu mischen. Auch damit läßt sich das zu verteilende Volumen vergrößern. Es treten jedoch ebenfalls die oben genannten Nachteile auf. Außerdem muß die für die Mischung vorgesehene Luft komprimiert und statisch mit dem Ammoniak vermischt werden. Es besteht auch die Möglichkeit, durch Zusetzen von Wasser zu Ammoniak die Verteilung im Gasstrom zu verbessern. Es kann mit Ammoniak-Wassermischungen im Verhältnis 1:3 bis 1:4 gearbeitet werden. Nachteilig bei diesem Verfahren ist, daß vergleichsweise viel Wasser als Ballast zu transportieren ist und entsprechend aufwendige Lager für das Ammoniak-Wassergemisch vorgesehen sein müssen. Außerdem wird die Energie zur Verdampfung des Wassers dem Gasstrom entzogen.

Aufgabe der Erfindung ist es, ein Verfahren der eingangs genannten Art vorzuschlagen, durch das auf einfache Weise eine gleichmäßige Verteilung von Ammoniak im Gasstrom erreicht wird. Weiter ist es Aufgabe der Erfindung, eine entsprechende Vorrichtung vorzu-

Erfindungsgemäß ist obige Aufgabe bei einem Verfahren der eingangs genannten Art dadurch gelöst, daß das Ammoniak in flüssigem Aggregatzustand direkt in den heißen Gasstrom eingedüst wird.

Es hat sich gezeigt, daß bei einer solchen direkten Eindüsung des flüssigen, weder mit Luft noch mit Wasser gemischten Ammoniaks, dieses spontan im Gasstrom selbst verdampft. Dadurch wird eine gleichmäßige Verteilung und somit gleichmäßige Konzentration des Ammoniaks im Gasstrom erreicht.

Mit dem beschriebenen Verfahren ist eine gleichmä-Bige Ammoniakverteilung auch dann zu erreichen, wenn die Ammoniak-Konzentration im Gasstrom vergleichsweise niedriger sein soll, also etwa in der Grö-Benordnung von 300 bis 1500 ppmv liegt. Dies ist beispielsweise vor SCR-Prozessen der Fall, die aufgrund der vergleichsweise niedrigen NOx-Konzentration eine entsprechend niedrige Ammoniak-Konzentration erforderlich machen. Die Verteilung des Ammoniaks im Gasstrom läßt sich weiter dadurch verbessern, daß das Ammoniak mit einem Druck zwischen 2 bis 50 bar in den heißen Gasstrom eingedüst wird. Es wird dadurch eine besonders feine Zerstäubung des flüssigen Ammoniaks erreicht, die die Verdampfung unterstützt.

Eine Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens zeichnet sich dadurch aus, daß in einem vom Gasstrom durchströmten Reaktor eine Düsenanordnung angeordnet ist, der über eine Pumpe flüssiges Ammoniak zugeführt ist. Um zu verhindern, daß das Ammoniak bereits in der Düsenanordnung verdampft, weist in bevorzugter Ausgestaltung der Erfindung die Düsenanordnung ein Wärmeschutzrohr auf, der einen Düsenstock der Dü-

senanordnung umschließt.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen und der folgenden Beschreibung von Ausführungsbeispielen. In der Zeichnung zeigen:

Fig. 1 eine schematische Ansicht der Vorrichtung zum Eindüsen von Ammoniak,

Fig. 2 bis 5 verschiedene Düsenanordnungen in Seitenansicht, und

Fig. 6 bis 11 verschiedene Düsenanordnungen in Aufsicht.

In den Fig. sind die Sprühkegel der Düsenanordnungen strichpunktiert dargestellt.

In einem Reaktor 1 ist eine Düsenanordnung 2 angeordnet, die einen oder mehrere Düsenstücke 3 aufweist, schlossen sind.

Die Düsenanordnung 2 ist über eine Leitung 5 und eine Pumpe 6 an einen Behälter 7 mit flüssigem Ammoniak angeschlossen. Die Pumpe 6 ist eine Membranpumpe oder eine Kreiselpumpe, beispielsweise eine Magnet- 20 pumpe. Insbesondere handelt es sich um eine Dosierpumpe, mit der sich auch kleine Mengen auch bei hohen Drücken fördern lassen und bei der eine genaue Mengendosierung erreicht ist.

net, das in den Reaktor 1 mündet. Außerdem liegt in der Leitung 5 ein Stellventil 9, das über einen die Temperatur im Reaktor 1 erfassenden Temperaturregler 10 oder extern zu steuern ist. Außerdem ist zwischen der Leitung 5 und dem Behälter 7 eine Bypaßleitung 11 vorge- 30

Die Funktionsweise der beschriebenen Vorrichtung ist etwa folgende:

Mittels der Pumpe 6 wird flüssiges Ammoniak aus dem Behälter 7 mit einem Druck zwischen 5 bar und 30 35 bar zu der Düsenanordnung 2 gefördert. Der Druck hängt dabei auch vom im Reaktor 1 herrschenden Druck ab.

Durch den Reaktor 1 strömt ein heißer Gasstrom 12, dessen Temperatur beispielsweise zwischen 250°C und 40 450°C liegt. Über die Düsen bzw. die Düsen 13 des Düsenstocks 3 wird das flüssige Ammoniak in den Gasstrom 12 eingesprüht. Der sich einstellende Sprühkegel ist mit 14 bezeichnet. Das eingedüste flüssige Ammonimes 12 praktisch schlagartig. Es verteilt sich damit gleichmäßig über den Querschnitt des Gasstroms 12.

Das Wärmeschutzrohr 4 schützt den Düsenstock 3 gegenüber der Wärme des heißen Gasstroms 12, so daß im Düsenstock 3 selbst das flüssige Ammoniak noch 50 nicht verdampft.

Beim Absperren des Ammoniakflusses in der Leitung 5 mittels des Stellventils 9 läßt sich kaum vermeiden, daß das Ammoniak Gasblasen bildet. Das Überströmventil 8 stellt sicher, daß beim erneuten Wiedereinschalten des 55 Ammoniakflusses die Gasblasen unter Umgehung der Düsenanordnung 2 direkt in den Reaktor 1 gelangen. Es ist damit gewährleistet, daß nach dem Einschalten des Ammoniakflusses sehr schnell die gewünschte Zerstäubung des flüssigen Ammoniaks an den Düsen 13 erfolgt.

Beim Ausführungsbeispiel nach Fig. 2 ist der Innenraum 15 des Wärmeschutzrohres 4, in dem der Düsenstock 3 verläuft, über Öffnungen 16, 17 einer Flanschplatte 18 mit der Umgebungsluft verbunden. Dadurch erfolgt eine natürliche Belüftung des Innenraums 15, 65 wodurch eine Kühlung des Düsenstocks 3 erreicht ist.

Die Düsenanordnung nach den Fig. 1, 2 und 6 ist für Reaktoren mit Kreisquerschnitt vorgesehen. Die Düse 13 ist in der Mitte des Kreisquerschnittes angeordnet.

Beim Ausführungsbeispiel nach Fig. 3 ist an den Innenraum 15 des Wärmeschutzrohres 4 eine Druckluftleitung 19 angeschlossen. Der Innenraum 15 wird hierdurch zwangsbelüftet.

Beim Ausführungsbeispiel nach Fig. 3 sind am Düsenstock 3 zwei Düsen 13 angeordnet. Sind zwei solche Düsenstöcke nebeneinander vorgesehen (vgl. Fig. 7), dann ergibt sich das in Fig. 7 dargestellte Sprühbild, wobei sich die Sprühkegel der vier Düsen 13 rosettenförmig überlagern. Eine solche Düsenanordnung ist für quadratische oder rechteckige Reaktorquerschnitte ge-

Beim Ausführungsbeispiel nach Fig. 4 ist das Wärmewelche jeweils von einem Wärmeschutzrohr 4 um- 15 schutzrohr 4 durch die der Flanschplatte 18 gegenüberliegende Wandung des Reaktors 1 hindurchgeführt. Es ist dort mittels einer Stopfbuchse 20 befestigt. Außerhalb der Stopfbuchse 20 ist das Wärmeschutzrohr 4 offen, so daß Kühlluft von der Öffnung 16 durch das Wärmeschutzrohr 4 hindurchzieht. Am Düsenstock 3 sind mehrere Düsen 13 angeordnet. Das Wärmeschutzrohr 4 stützt gleichzeitig den Düsenstock 3.

Beim Ausführungsbeispiel nach Fig. 5, bei dem das Wärmeschutzrohr 4 wie beim Ausführungsbeispiel nach An der Leitung 5 ist ein Überströmventil 8 angeord- 25 Fig. 4 befestigt ist, ist der Düsenstock 3 beidseitig durch das Wärmeschutzrohr 4 geführt. Der Düsenstock 3 ist beidseitig an die Leitung 5 angeschlossen. Diese Anordnung eignet sich besonders für solche Fälle, in denen am Düsenstock 3 sehr viele Düsen vorgesehen sind.

Bei der Ausführung nach Fig. 5 sind mehrere Wärmeschutzrohre 4 mit Düsenstöcken 3 parallel nebeneinander angeordnet. Außerdem sind weitere Wärmeschutzrohre 4 mit Düsenstöcken 3 vorgesehen, die die erstgenannten Wärmeschutzrohre 4 kreuzen (vgl. Fig. 11).

Bei der Anordnung nach Fig. 8 weist die Düsenanordnung vier Düsenstöcke 3 auf, die beispielsweise entsprechend Fig. 3 gestaltet sind. Die Düsenstöcke 3 sind wechselweise an den beiden gegenüberliegenden Seiten des Reaktors 1 angeschlossen.

Bei der Düsenanordnung nach Fig. 9 sind zwei vergleichsweise lange Düsenstöcke 3 vorgesehen. Diese sind entsprechend Fig. 5 jeweils an beiden Seiten des Reaktors 1 an die Leitung 5 angeschlossen.

Die Düsenanordnung nach Fig. 10 ist der der Fig. 9 ak verdampft unter der Wirkung des heißen Gasstro- 45 ähnlich. Jedoch sind hier die Düsen 13 der Düsenstöcke 3 schräggestellt, so daß sich im Reaktorquerschnitt entsprechend elliptische Sprühkegelquerschnitte einstellen.

Die gezeigten Reaktorquerschnitte sind rund oder rechteckig. Es lassen sich jedoch auch sechs- oder achteckige Reaktorquerschnitte vorsehen. Anstelle der gezeigten Rundstrahldüsen können auch andere Düsenformen, wie beispielsweise Flachstrahldüsen, verwendet werden.

Bei den beschriebenen Ausführungsbeispielen liegt die Düsenaustrittsrichtung in Richtung des Gasstroms 12. Die Anordnung kann jedoch auch so getroffen werden, daß die Düsenaustrittsrichtung im Gegenstrom zum Gasstrom liegt.

Da flüssiges Ammoniak produktionsbedingt geringe Verschmutzungen enthält, können nach längerem Betrieb die Düsen 13 verstopfen. Die Düsen 13 sind deshalb zu Reinigungszwecken auswechselbar.

- Leerseite -

3728557

Nummer:

Int. Cl.4:

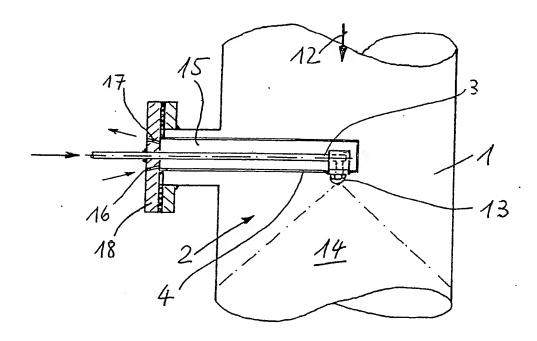
Anmeldetag: Offenlegungstag: 37 28 557 B 01 D 53/34 27. August 1987

9. März 1989

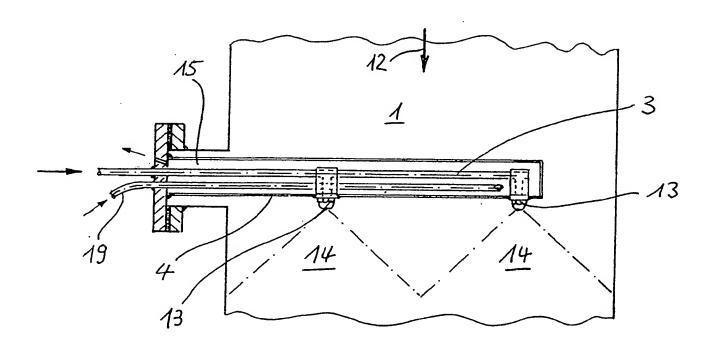
Figur 1

Figur 2

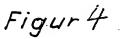
3728557

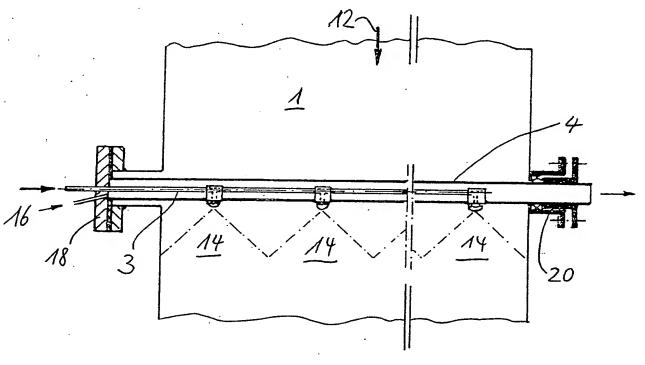


Figur 3

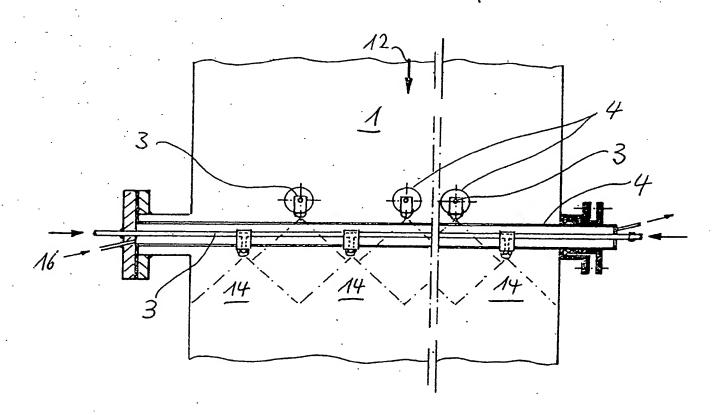


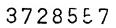
3728557

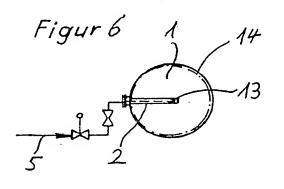


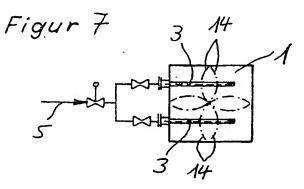


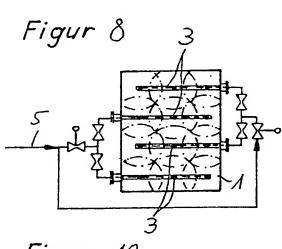
Figur 5

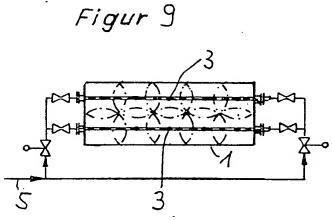


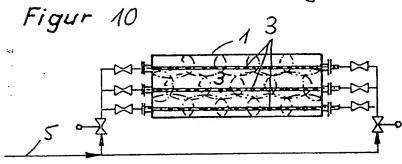












Figur 11

